

2005.02.10 13:23:40

明 細 書

ナノスケール物質の構造制御方法、及び、当該構造制御方法を用いたナノスケールの低次元量子構造体の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、ナノスケール物質、特に、カーボンナノチューブやナノ粒子等の1次元構造あるいは0次元構造である低次元量子構造体を選択的に制御するナノスケール物質の構造制御方法、及び、当該構造制御方法を用いたナノスケールの低次元量子構造体の製造方法に関するものである。

背景技術

[0002] 先端材料や新素材の開発は、エレクトロニクス、環境・エネルギー、バイオテクノロジー等様々な分野での産業や科学技術を支える基盤として、非常に重要である。昨今では、とりわけ、ナノスケール物質が、バルクな物質には見られない全く新しい性質や機能を発現させるため、その開発に大きな関心が寄せられている。

[0003] このようなナノスケール物質として、例えば、カーボンナノチューブが挙げられる。カーボンナノチューブはグラファイトシートが管状になった構造を持つ。この管が一重であるか多重であるかによって、それぞれ単層ナノチューブと多層ナノチューブに分けられる。このカーボンナノチューブは、カイラリティーにより金属的にも半導体的にもなり得る独特の電氣的性質を持っている。

[0004] カーボンナノチューブのカイラリティーについて図2を用いて説明する。カーボンナノチューブのカイラリティーは、図2に示すように、グラファイトシートの巻き方によって異なる。カイラリティーの異なるカーボンナノチューブは状態密度(電子状態)が異なっている。

[0005] 上記のように、カーボンナノチューブには、様々なカイラリティーのものがあり、カーボンナノチューブを合成すると、異なるカイラリティーを持ち、電子状態が異なる構造のものが複数含まれてできあがる。

[0006] このようなカーボンナノチューブを産業、工業、および学術上で利用する際、利用目的により、特定の構造を持つカーボンナノチューブが求められる。そこで、様々な

構造のものが含まれるカーボンナノチューブから、同じ構造のカーボンナノチューブを選択的に取り出す方法が必要となる。

[0007] しかし、現状において、異なる電子状態を含むカーボンナノチューブから、特定の構造のカーボンナノチューブを取り出す方法あるいは特定構造のカーボンナノチューブを取り除く方法は全くない。

[0008] 本発明は、上記の問題点に鑑みてなされたものであり、その目的は、ナノスケールの低次元量子構造体において、特定の状態密度の低次元量子構造体を混合物から選択的に酸化させる構造制御方法、及び、当該構造制御方法を用いたナノスケールの低次元量子構造体の製造方法を実現することにある。

発明の開示

[0009] 本願発明者等は、上記課題を解決するために、単層カーボンナノチューブの試料に対して異なる波長でラマンスペクトルを測定した。その結果、励起波長によりスペクトルのピーク位置が異なっていることが判明した。そのため、状態密度の違う単層カーボンナノチューブは、電子状態が違うので異なる波長の電磁波に共鳴するだろうと考え、この共鳴により構造を制御できることを見だし、本発明を完成させるに至った。

[0010] 本発明に係る構造制御方法は、上記課題を解決するために、酸素雰囲気下において、状態密度の異なるナノスケールの低次元量子構造体の混合物に電磁波を照射し、当該電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を選択的に酸化させることを特徴としている。

[0011] さらに、本発明に係る構造制御方法では、上記混合物に電磁波を照射することにより、上記電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を混合物から取り除いてもよい。

[0012] 上記構造制御方法によると、電磁波を照射することにより、照射した電磁波と共鳴する低次元量子構造体において電磁波の吸収が大きくなり、電磁波の強度を大きくすると共鳴する低次元量子構造体が酸化される。ゆえに、異なる状態密度の構造を持つ低次元量子構造体の混合物から特定の電子状態の構造を持つ低次元量子構造体を選択的に酸化させることができる。また、この酸化によって、特定の状態密度

の構造を持つ低次元量子構造体を選択的に取り除くことができる。さらに、混合物中において目的の状態密度をもつ構造の低次元量子構造体を選択的に残すことも可能である。そのため、異なる電子状態を持つ構造の低次元量子構造体から、同じ電子状態の低次元量子構造体を選択的に取り出すことができる。

[0013] また、本発明に係るナノスケールの低次元量子構造体の製造方法は、上記課題を解決するために、酸素雰囲気下において、状態密度の異なるナノスケールの低次元量子構造体の混合物に電磁波を照射し、当該電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を選択的に酸化させることで、上記電磁波と共鳴する状態密度の構造を取り除く工程を含むことを特徴としている。

[0014] 上記ナノスケールの低次元量子構造体の製造方法では、低次元量子構造体の混合物から特定の状態密度の低次元量子構造体を取り除いた、ナノスケールの低次元量子構造体を製造することができる。

[0015] また、本発明に係るナノスケールの低次元量子構造体の製造方法は、上記課題を解決するために、酸素雰囲気下において、状態密度の異なるナノスケールの低次元量子構造体の混合物に電磁波を照射し、当該電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を選択的に酸化させることで、上記電磁波と共鳴しない状態密度の構造を残す工程を含むことを特徴としている。

[0016] 上記ナノスケールの低次元量子構造体の製造方法では、低次元量子構造体の混合物において、目的の状態密度を有する低次元量子構造体を選択的に残した、ナノスケールの低次元量子構造体を製造することができる。

[0017] 本発明のさらに他の目的、特徴、および優れた点は、以下に示す記載によって十分わかるであろう。また、本発明の利益は、添付図面を参照した次の説明で明白になるであろう。

図面の簡単な説明

[0018] [図1(a)]本発明の実施形態を示すものであり、電磁波を照射したカーボンナノチューブの模式図である。

[図1(b)]本発明の実施形態を示すものであり、図1(a)とは波長の異なる電磁波を照射したカーボンナノチューブの模式図である。

[図2]カーボンナノチューブのカイラリティーの違いを説明するためのグラフアイトシートを表す模式図である。

[図3]カーボンナノチューブの状態密度とエネルギーとの関係を示す図である。

[図4(a)]実施例の単層カーボンナノチューブの試料のSEM像を表す図である。

[図4(b)]図4(a)の拡大図である。

[図5]単層カーボンナノチューブの試料の高波数側のラマンスペクトルである。

[図6]異なる波長のレーザ光を照射した単層カーボンナノチューブの試料のラマンスペクトルである。

[図7(a)]波長514.5nm、 $20\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光を30分間照射した前後の、単層カーボンナノチューブの試料のラマンスペクトルである。

[図7(b)]波長488.0nm、 $20\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光を30分間照射した前後の、単層カーボンナノチューブの試料のラマンスペクトルである。

[図7(c)]波長457.9nm、 $20\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光を30分間照射した前後の、単層カーボンナノチューブの試料のラマンスペクトルである。

[図8(a)]波長514.5nm、 $10\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光を2時間照射した前後の、単層カーボンナノチューブの試料のラマンスペクトルである。

[図8(b)]波長488.0nm、 $10\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光を2時間照射した前後の、単層カーボンナノチューブの試料のラマンスペクトルである。

[図8(c)]波長457.9nm、 $10\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光を2時間照射した前後の、単層カーボンナノチューブの試料のラマンスペクトルである。

[図9]図7(a)ー図7(c)および図8(a)ー図8(c)におけるラマンスペクトルのピークの相対強度の変化を表したグラフである。

[図10] $50\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光を70分間照射した前後の、単層カーボンナノチューブの試料のラマンスペクトルである。

発明を実施するための最良の形態

[0019] 本発明の一実施形態について図面に基づいて説明すると以下の通りである。なお、本発明は、以下の本実施の形態の記載に限定されるものではない。

[0020] 本発明の構造制御方法を用いる対象のナノスケールの構造体としては、低次元量

子構造体であることが好ましい。ここで、「低次元量子構造体」とは、ナノ粒子などの超微粒子のような0次元構造(球状)の構造体、およびナノチューブ、ナノワイヤーなどの1次元構造(針状)の構造体をいう。また「ナノスケール」とは、その粒径や外径が100nm以下のものをいうが、本発明の構造制御方法は、その粒径や外径が10nm以下のものに好適であり、3nm以下のものにさらに好適に適用することができる。

[0021] また、低次元量子構造体は、状態密度がスパイク状となる構造であることが好ましい。例えばナノチューブが挙げられる。ナノチューブは、単層でも多層でもかまわないが、単層であることが好ましい。さらにナノチューブは、外径が10nm以下、特に3nm以下であることが好ましい。なお、スパイク状とは、状態密度のピークの先端の形状が、シャープであり、階級状または放射線状ではない形状をいう。

[0022] 本発明の構造制御方法を用いる対象として、単層カーボンナノチューブを用いる場合、単層カーボンナノチューブは、通常の方法で形成すればよく、例えば、アーク放電法、レーザ蒸発法、化学蒸着(CVD、Chemical Vapor Deposition)法等を利用し、触媒金属を用いて形成することができる。触媒金属としては、例えば鉄や、ニッケル、コバルト、白金、パラジウム、ロジウム、ランタン、イットリウム等が挙げられる。化学蒸着法を用いた場合、例えば、アセチレン、ベンゼン、エタン、エチレン、エタノール等を触媒金属を用いて高温で化学反応させると、基板上にカーボンナノチューブが形成される。この基板は、高温に耐えられる材料であればよく、例えば、シリコン、ゼオライト、石英、サファイア等を使用することができる。

[0023] 本発明の構造制御方法において、低次元量子構造体に照射する電磁波は、酸化させたい低次元量子構造体が共鳴する波長で、低次元量子構造体を酸化させる強度の電磁波であれば特に限定されない。例えば、レーザ光が挙げられるが、これに限定はされない。さらに、例えば、多数の波長を含んだ幅の広い電磁波を用いれば、複数の電子状態をもつ構造の低次元量子構造体を一度に酸化させることもできる。なお、電磁波の強度は、例えば、エネルギー密度として測定すればよい。

[0024] また、本発明の構造制御方法において、低次元量子構造体に照射する電磁波を集光させてもよい。集光させることにより、低次元量子構造体の混合物に対し、局所的に電磁波を照射することができる。すなわち、場所によって、異なる目的の低次元

量子構造体を選択的に酸化させ、取り除くことができる。集光の方法は、レンズを用いて絞るなど、通常の方法を用いればよい。

[0025] 本発明に係る構造制御方法について図1(a)および図1(b)を用いて説明する。本発明の構造制御方法は、特定の構造の低次元量子構造体を酸化させるため、酸素雰囲気下で行う。例えば、大気中で行うことができる。図1(a)および図1(b)に示すように、大気中で、異なる波長の電磁波を照射することにより、混合物中では照射した電磁波と共鳴する低次元量子構造体(図1(a)では白抜き、図1(b)では斜線で表している)において、電磁波の吸収が大きくなる。電磁波の強度を上げると、共鳴する低次元量子構造体だけが酸化され、共鳴する低次元量子構造体は元の構造を保持できなくなる。そのため、例えば、上記低次元量子構造体が、カーボンからなるものであれば、照射した電磁波と共鳴する低次元量子構造体は酸化されることにより CO_x となるので、取り除くことができる。なお、照射した電磁波と共鳴しない低次元量子構造体は酸化されずに残る。

[0026] ここで、共鳴について説明する。カイラリティーの異なるカーボンナノチューブは状態密度が異なっており、図3に示すように、あるカイラリティーを持つ(図3においては状態密度を示す)単層カーボンナノチューブに、ある波長を持つ電磁波を照射した場合、スパイク上のエネルギー差と電磁波のエネルギーとが近いときに、共鳴が起こり、電磁波の吸収が大きくなる。なお、カイラリティーが異なると、状態密度におけるスパイク状のエネルギー差は異なる。

[0027] 以上のように、本発明に係る構造制御方法は、異なる状態密度の構造を持つ低次元量子構造体の混合物から特定の状態密度の構造を持つ低次元量子構造体を選択的に酸化させ、消滅させることができる。さらに、複数種類の低次元量子構造体を酸化させることで、混合物中の目的の状態密度の構造を持つ低次元量子構造体を選択的に残すことも可能である。そのため、異なる状態密度を持つ構造の低次元量子構造体から、同じ状態密度の低次元量子構造体を選択的に取り出せることができる。

[0028] なお、照射した電磁波と共鳴する低次元量子構造体が酸化したこと、および、それ以外の低次元量子構造体が酸化しなかったことを確認するためには、例えば、ラマン

分光法等を用いて、電磁波照射前後の低次元量子構造体のスペクトルを測定すればよい。具体的には、異なった波長の電磁波の照射前後で、ラマンスペクトルを測定し、スペクトルにおけるピーク強度の減少を測定することにより、低次元量子構造体が酸化したことが確かめられる。この場合、目的以外の低次元量子構造体が酸化されないように、低いエネルギー密度の電磁波を用いてスペクトルを測定する必要がある。なお、酸化の確認方法は、上記方法には限定されない。

(実施例)

本発明の実施例について、実験1ないし実験3に基づいて以下に詳細に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

[0029] 〔実験1〕単層カーボンナノチューブ

単層カーボンナノチューブの試料は、鉄を含んだ触媒を塗布したシリコン(Si)基板上に、エタノールを使用し、熱CVD法を用いて900℃で合成した。

[0030] 本実験で得られた単層カーボンナノチューブの試料のSEM像を観察した。これを図4(a)および図4(b)に示す。図4(a)に示すように、基板上にSWNTが成長していることが確認できる。また、図4(b)は、図4(a)の拡大図である。

[0031] また、この試料のラマンスペクトルを測定した。その結果が図5である。励起光源として、Arイオンレーザ(波長514.5nm)を用いた。

[0032] 図5に示される高波数側のスペクトルには、「G band」、「D band」と呼ばれる二種類のピークが主に観測され、この内、 1590cm^{-1} 付近に見られる「G band」はグラファイト(正確には炭素原子の六角格子内振動)に起因するピークである。また、 1350cm^{-1} 付近に見られる「D band」と呼ばれるピークは、単層カーボンナノチューブ内の欠陥やアモルファスカーボン等のダングリングボンドを持つ炭素原子に起因するピークである。すなわち、G/D(G band/D band)強度比が大きければ大きいほど、結晶性のいいSWNTが作製できたことを示す。本実験で作製した試料のG/D比は50程度である。よって、高品質なSWNTができていることがわかる。

[0033] 〔実験2〕ラマンスペクトルの励起波長依存性

実験1で得られた単層カーボンナノチューブの試料に、大気中で、波長がそれぞれ514.5, 488.0, 457.9nmであるエネルギー密度 $1\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光を照射し

、ラマンスペクトルを測定した。なお、光源としてArレーザを用いた。その結果を図6に示す。本図は、上から順に、波長457. 9, 488. 0, 514. 5nmのレーザ光を照射したときのラマンスペクトルである。図6に示すように、励起波長により、ラマンスペクトルのピークの位置が異なっていた。これは、照射するレーザ光の波長により状態密度の違う単層カーボンナノチューブが共鳴していることを示している。

[0034] 〔実験3〕高エネルギー密度のレーザ光照射後のラマンスペクトル

実験1で得られた単層カーボンナノチューブの試料に、大気中で、波長514. 5nmのArレーザ光をエネルギー密度 $20\text{kW}/\text{cm}^2$ で30分間照射し、その後ラマンスペクトルを測定した。ラマンスペクトルの測定条件は、上記実験2と同様に行った。この結果が図7(a)－図7(c)である。なお各図において、上がレーザ光照射前のスペクトル、下が照射後のスペクトルである。この表示方法は、以下で説明する図8(a)－図8(c)及び図10においても同様である。図7(a)－図7(c)が示すように、各波長のレーザ光と共鳴する状態密度の単層カーボンナノチューブは、エネルギー密度 $20\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光照射後、それぞれピーク強度がやや減少していた。

[0035] 同様に、カーボンナノチューブの試料にArレーザ光をエネルギー密度 $10\text{kW}/\text{cm}^2$ で2時間照射し、その後ラマンスペクトルを測定した。その結果が図8(a)－図8(c)である。図8(a)に示すように、514. 5nmの波長の光と共鳴する電子状態のカーボンナノチューブは、エネルギー密度 $10\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光照射後、ピークが著しく減少していた。また、図8(b)および図8(c)が示すように、488. 0, 457. 9nmの波長の光と共鳴する電子状態のカーボンナノチューブは、レーザ光照射後もあまりピーク強度の減少が見られなかった。

[0036] 上記結果からレーザ光照射前後のピークの平均的な強度の比をグラフに表したものが、図9である。図9に示すように、波長514. 5nmのレーザ光を照射した場合、エネルギー密度 $10\text{kW}/\text{cm}^2$ で照射することで、選択的に、514. 5nmの波長の光と共鳴する単層カーボンナノチューブが酸化されることがわかった。すなわち、照射する光の波長とエネルギー密度とを調整することにより、照射した光の波長と共鳴する状態密度の単層カーボンナノチューブを選択的に酸化できる、そのため選択的に取り除くことができることわかった。また、照射した光の波長と共鳴しない状態密度の単

層カーボンナノチューブは、酸化されずに残ることがわかった。なお、酸化により、カーボンナノチューブは CO_x となって消失される。

- [0037] さらに、上記と同様にカーボンナノチューブの試料にArレーザ光をエネルギー密度 $50\text{kW}/\text{cm}^2$ で70分間照射し、その後ラマンスペクトルを測定した。ここでは、 514.5nm の波長のラマンスペクトルを測定した。この結果が図10である。図10に示すように、エネルギー密度 $50\text{kW}/\text{cm}^2$ のレーザ光照射後は、Si基板からのラマンスペクトルのピーク以外は観測されなかった。この測定により、エネルギー密度 $50\text{kW}/\text{cm}^2$ で70分間のレーザ光照射で、ほとんどの単層カーボンナノチューブが酸化し、消滅したことがわかった。
- [0038] 以上のように、本発明に係る構造制御方法は、酸素雰囲気下において、状態密度の異なるナノスケールの低次元量子構造体の混合物に電磁波を照射し、当該電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を選択的に酸化させることを特徴としている。
- [0039] また、上記混合物に電磁波を照射することにより、上記電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を混合物から取り除いてもよい。
- [0040] また、本発明に係るナノスケールの低次元量子構造体の製造方法は、酸素雰囲気下において、状態密度の異なるナノスケールの低次元量子構造体の混合物に電磁波を照射し、当該電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を選択的に酸化させることで、上記電磁波と共鳴する状態密度の構造を取り除く工程を含む。
- [0041] また、本発明に係るナノスケールの低次元量子構造体の製造方法は、酸素雰囲気下において、状態密度の異なるナノスケールの低次元量子構造体の混合物に電磁波を照射し、当該電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を選択的に酸化させることで、上記電磁波と共鳴しない状態密度の構造を残す工程を含む。
- [0042] さらに、上記低次元量子構造体は、ナノチューブまたはナノ粒子であってもよい。
- [0043] 低次元量子構造体がナノチューブまたはナノ粒子であると、状態密度がスパイク状の構造を持つ。それゆえ、上記構造制御方法によると、低次元量子構造体を特定の波長の電磁波と良好に共鳴させることができる。
- [0044] さらに、上記低次元量子構造体は、カーボンまたはボロンナイトライドからなってい

てもよい。

[0045] カーボンまたはボロンナイトライドには、ナノスケールの構造体の構造が明確になっているものが開発されている。それゆえ、本発明に係る構造制御方法を産業や工業、あるいは学術上に直ぐに容易に利用することができる。

[0046] さらに、上記低次元量子構造体は、単層からなる構造であつてもよい。

[0047] 低次元量子構造体は単層からなる構造であると、特定の状態密度をとることとなる。それゆえ、上記構造制御方法を用いる際に、特定の低次元量子構造体と共鳴させる電磁波の波長を選択しやすい。

[0048] さらに、上記電磁波としてレーザ光を用いてもよい。

[0049] 電磁波としてレーザ光を用いると、照射する電磁波の波長や強度を調整しやすい。それゆえ、上記構造制御方法を用いる際に、高エネルギーの電磁波を効率よく低次元量子構造体の混合物に照射でき、特定の状態密度を持つ構造の低次元量子構造体を酸化させ、取り除くことができる。また、レーザ光は、直進性が強く広がりにくいので、集光させやすい。ここで、電磁波を集光させることを考える。電磁波を集光させることで、低次元量子構造体の混合物に対し、低次元量子構造体の混合物に局所的に電磁波を照射することができる。よって、レーザ光を用いると、混合物の場所によって、異なる目的の低次元量子構造体を選択的に酸化させ取り除くことが容易にできる。

[0050] 尚、発明を実施するための最良の形態の項においてなした具体的な実施態様は、あくまでも、本発明の技術内容を明らかにするものであつて、そのような具体例にのみ限定して狭義に解釈されるべきものではなく、本発明の精神と次に記載する特許請求の範囲内で、いろいろと変更して実施することができるものである。

産業上の利用の可能性

[0051] 本発明の構造制御方法、及び、当該構造制御方法を用いたナノスケールの低次元量子構造体の製造方法は、以上のように、照射した電磁波の波長と共鳴する状態密度の構造を持つ低次元量子構造体を混合物中で選択的に酸化させることができる。また、この酸化により、特定の状態密度の構造を持つ低次元量子構造体を混合物中から選択的に取り除くことができる。さらに、混合物中で目的の状態密度の構造を持

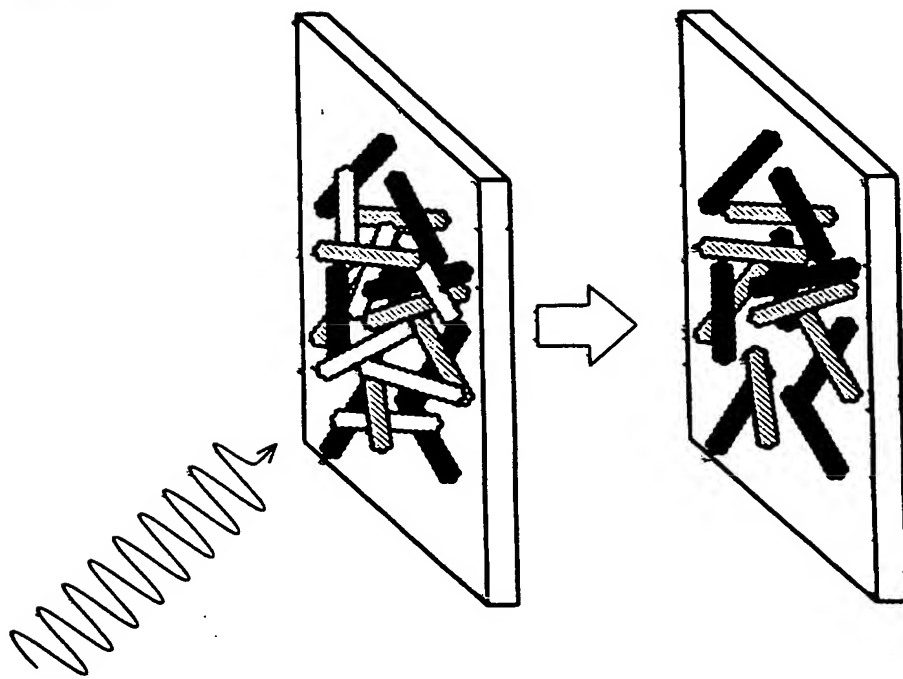
つ低次元量子構造体を選択的に残すことも可能である。

- [0052] 従って本発明は、ナノテクノロジーを用いた、エレクトロニクスや情報通信の分野、化学、材料、環境、エネルギーの分野、バイオ、医療、医薬等の生命科学の分野等で利用が可能である。例えば、光デバイス、電子デバイスやマイクロデバイスなどの機能材料や構造材料の構造制御において広い範囲で利用できる。特に、電子放出材料、STMなどの探針、マイクロマシン用細線、量子効果素子用の細線、電界効果トランジスタ、単電子トランジスタ、水素吸蔵材、バイオデバイスなどの機能材料の構造制御において有効に利用可能である。

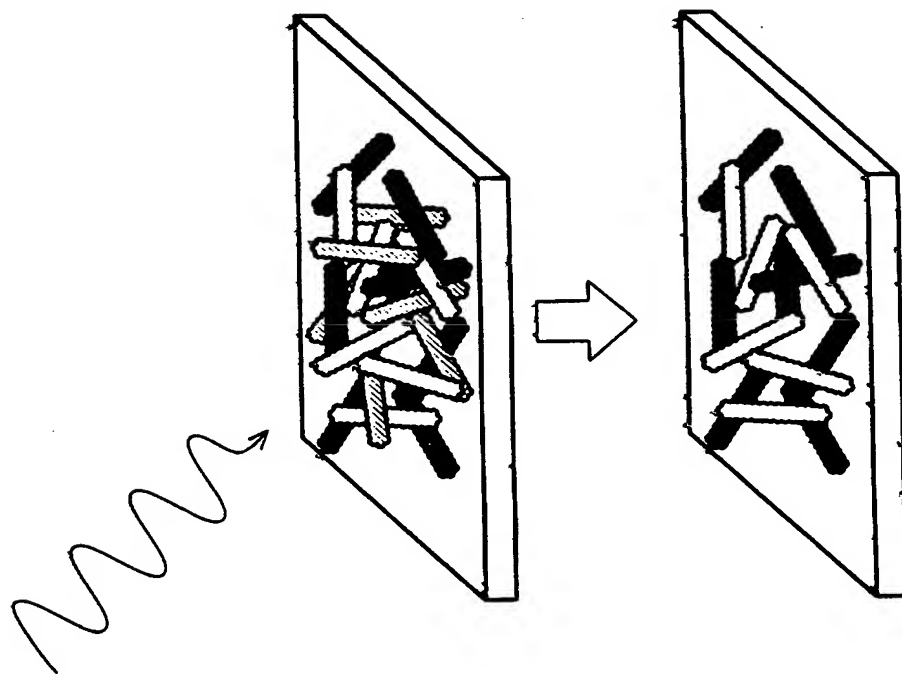
請求の範囲

- [1] 酸素雰囲気下において、状態密度の異なるナノスケールの低次元量子構造体の混合物に電磁波を照射し、当該電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を選択的に酸化させることを特徴とする構造制御方法。
- [2] 上記混合物に電磁波を照射することにより、上記電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を混合物から取り除くことを特徴とする請求の範囲第1項に記載の構造制御方法。
- [3] 上記低次元量子構造体は、ナノチューブまたはナノ粒子であることを特徴とする請求の範囲第1項または第2項に記載の構造制御方法。
- [4] 上記低次元量子構造体は、カーボンまたはボロンナイトライドからなることを特徴とする請求の範囲第1項から第3項の何れか1項に記載の構造制御方法。
- [5] 上記低次元量子構造体は、単層からなる構造であることを特徴とする請求の範囲第1項から第4項の何れか1項に記載の構造制御方法。
- [6] 上記電磁波としてレーザ光を用いることを特徴とする請求の範囲1項から第5項の何れか1項に記載した構造制御方法。
- [7] 酸素雰囲気下において、状態密度の異なるナノスケールの低次元量子構造体の混合物に電磁波を照射し、当該電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を選択的に酸化させることで、上記電磁波と共鳴する状態密度の構造を取り除く工程を含むことを特徴とするナノスケールの低次元量子構造体の製造方法。
- [8] 酸素雰囲気下において、状態密度の異なるナノスケールの低次元量子構造体の混合物に電磁波を照射し、当該電磁波と共鳴する状態密度の低次元量子構造体を選択的に酸化させることで、上記電磁波と共鳴しない状態密度の構造を残す工程を含むことを特徴とするナノスケールの低次元量子構造体の製造方法。

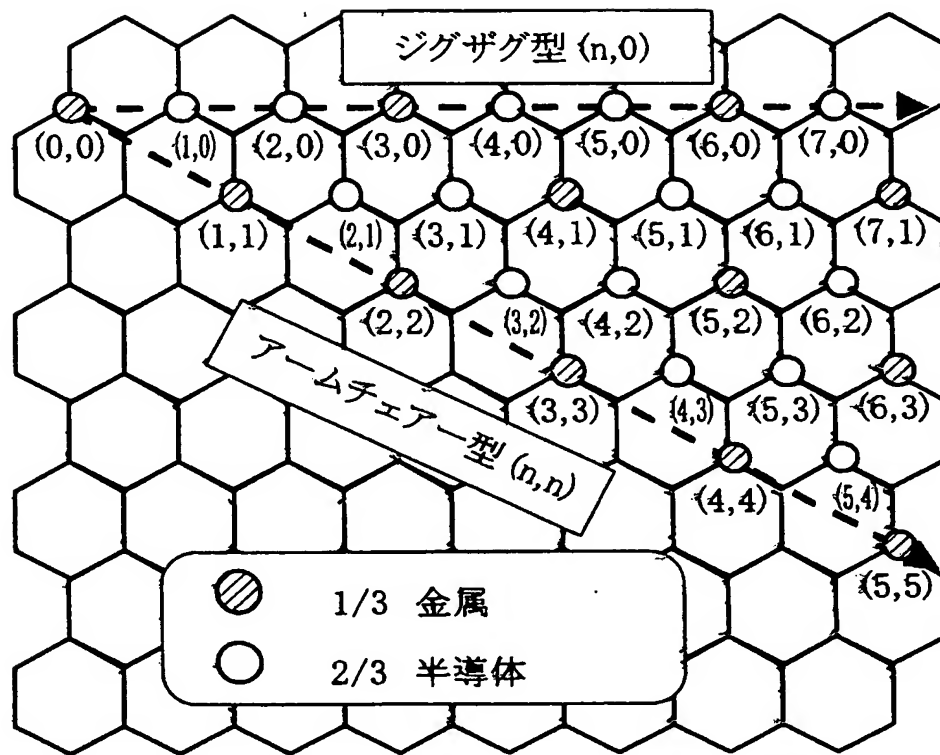
[図1(a)]



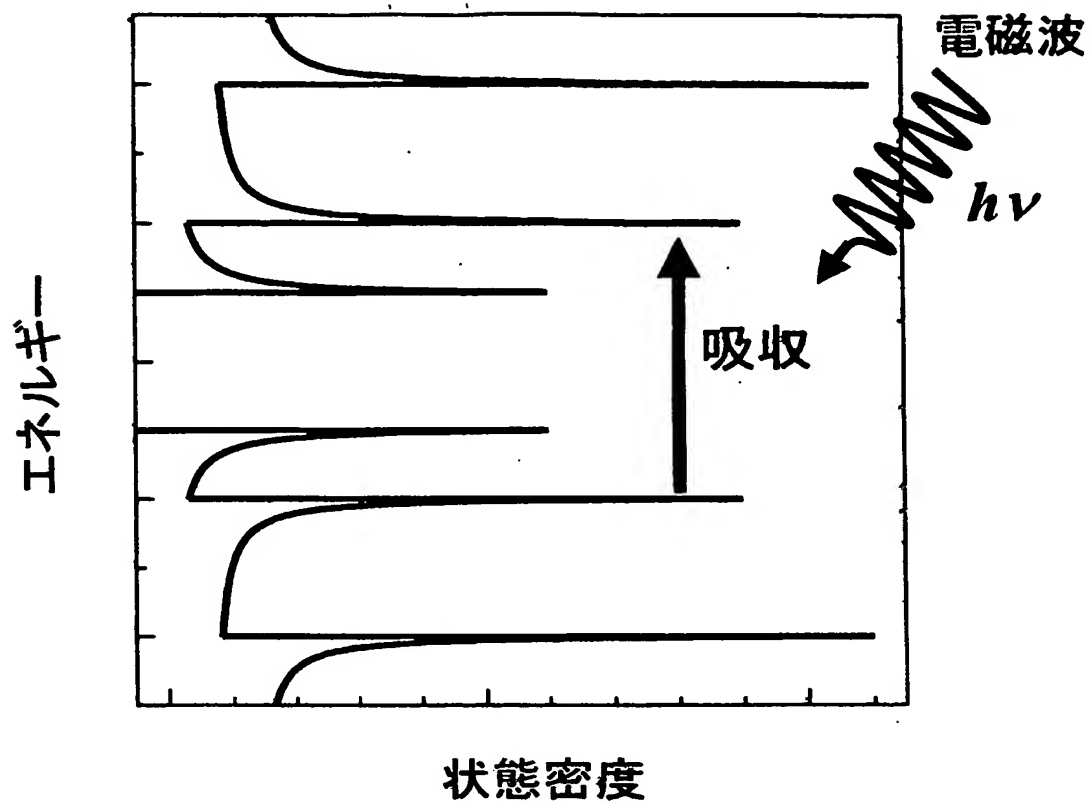
[図1(b)]



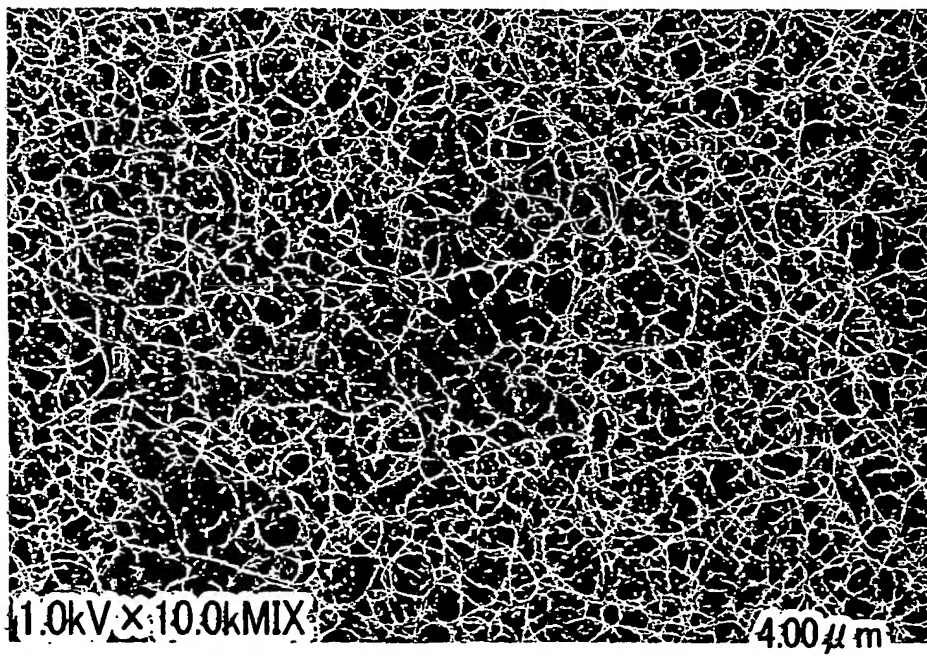
[図2]



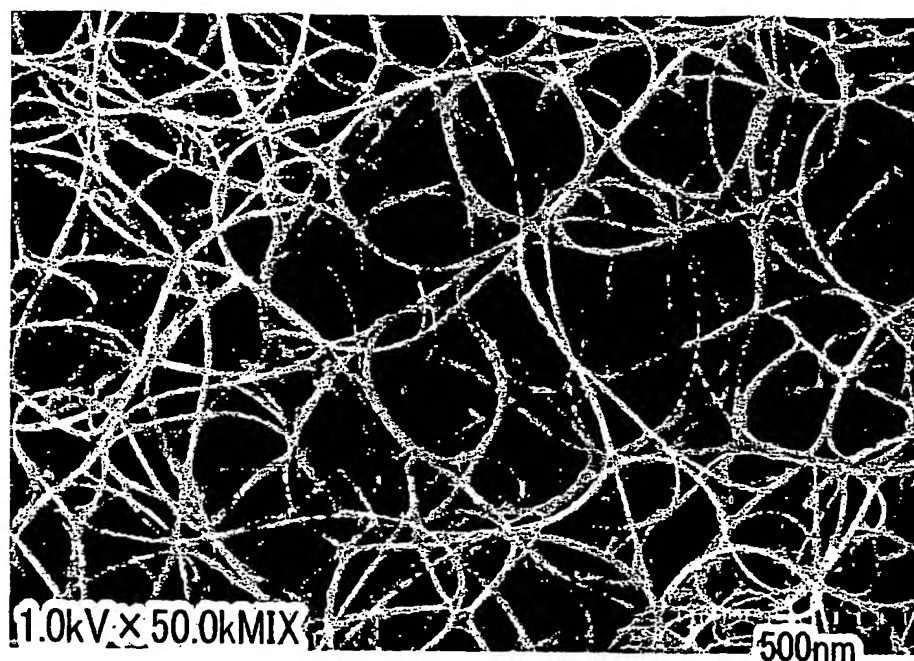
[図3]



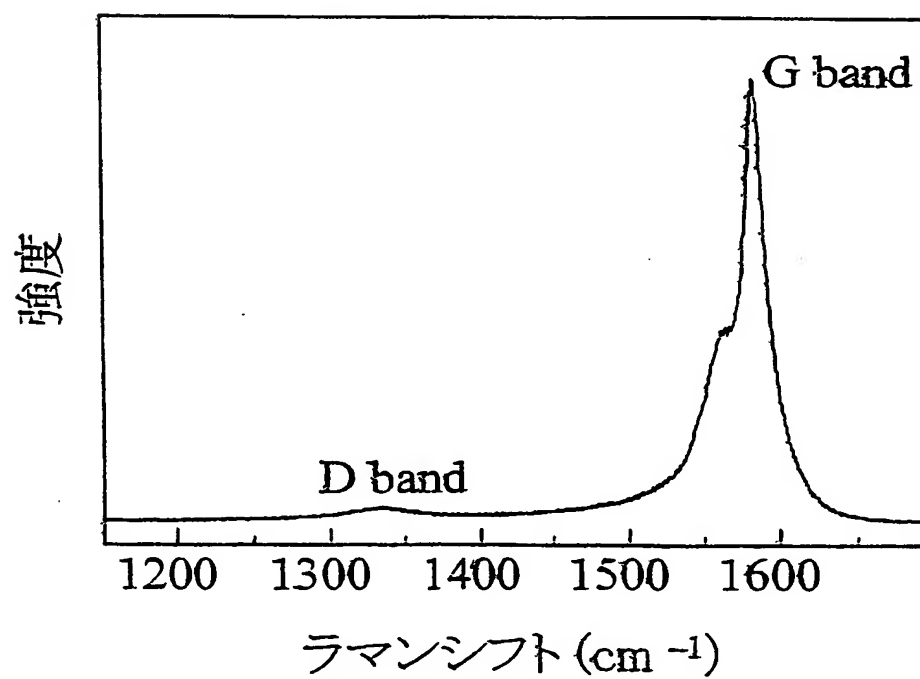
[図4(a)]



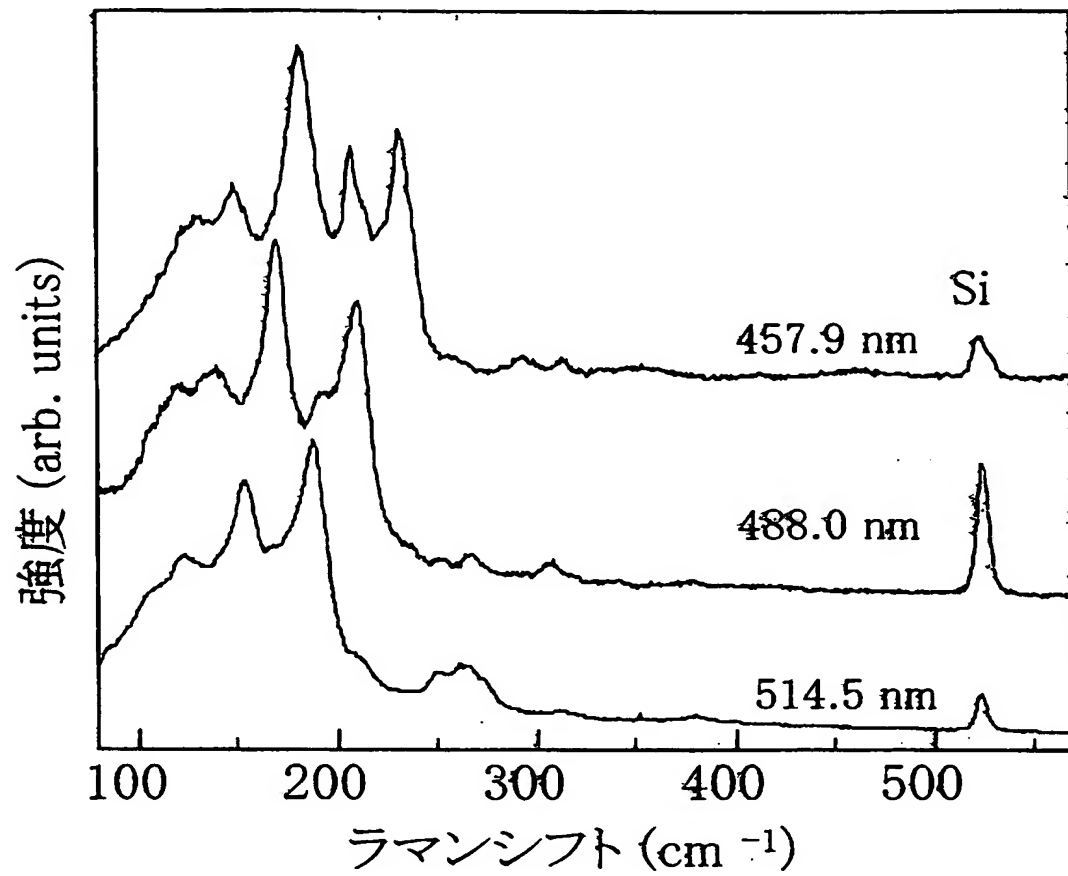
[図4(b)]



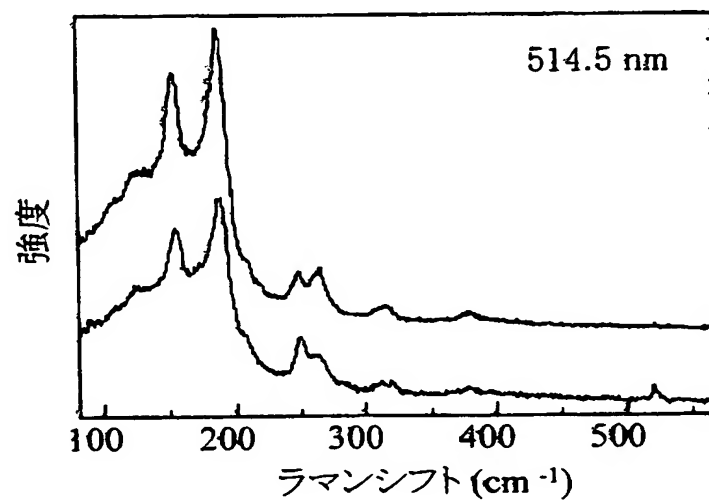
[図5]



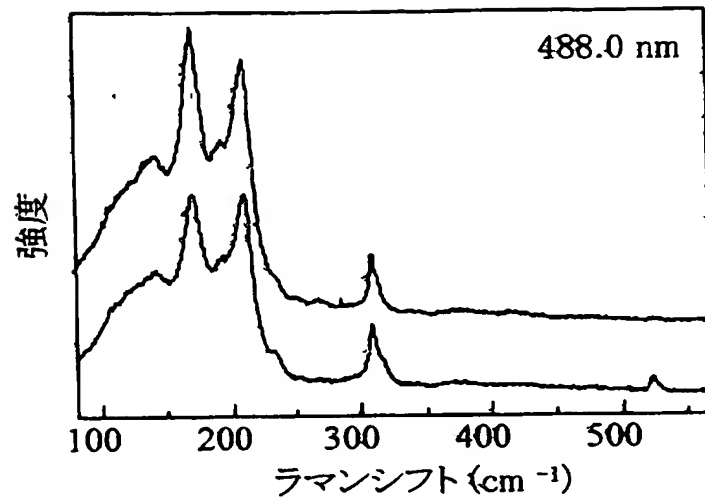
[図6]



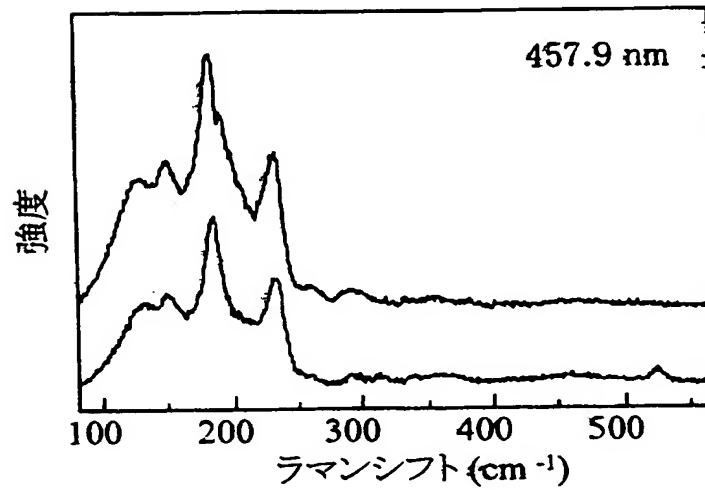
[図7(a)]



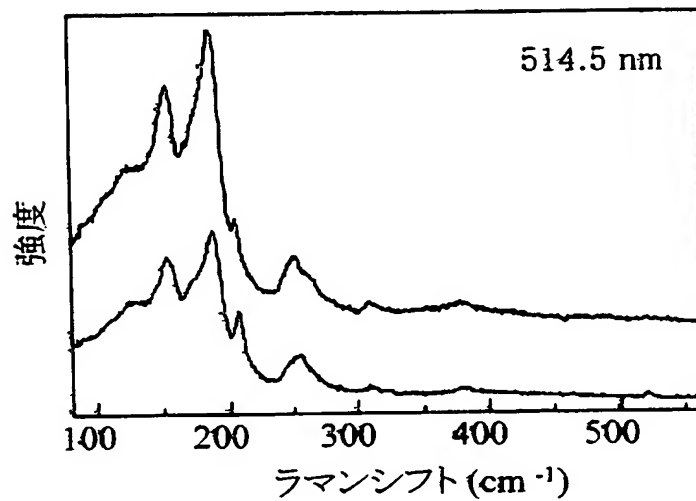
[図7(b)]



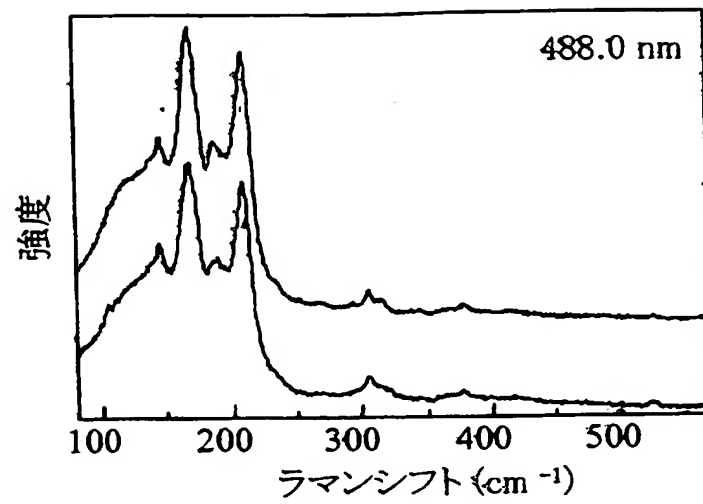
[図7(c)]



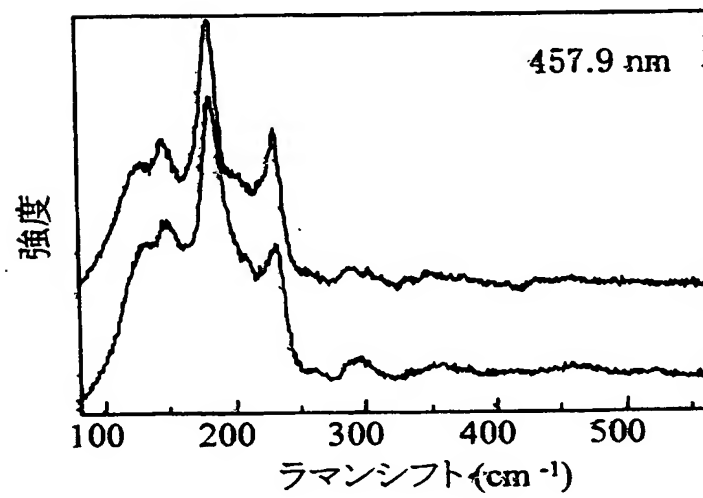
[図8(a)]



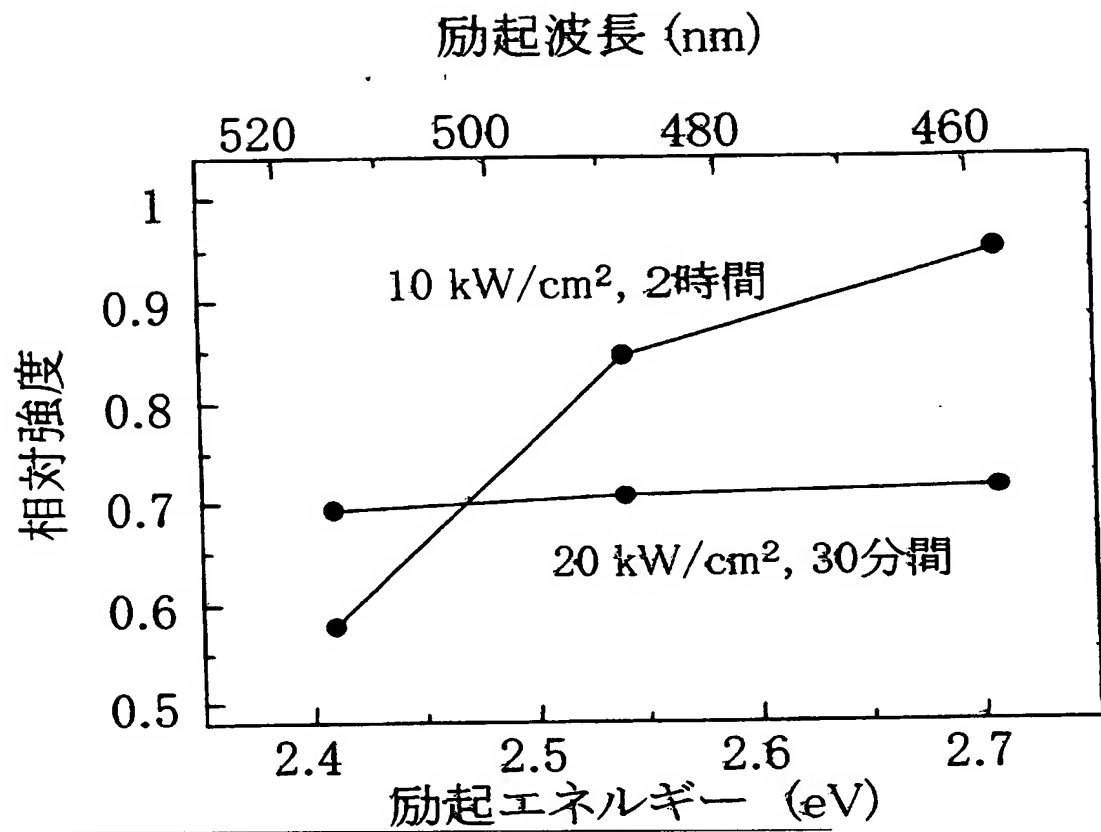
[図8(b)]



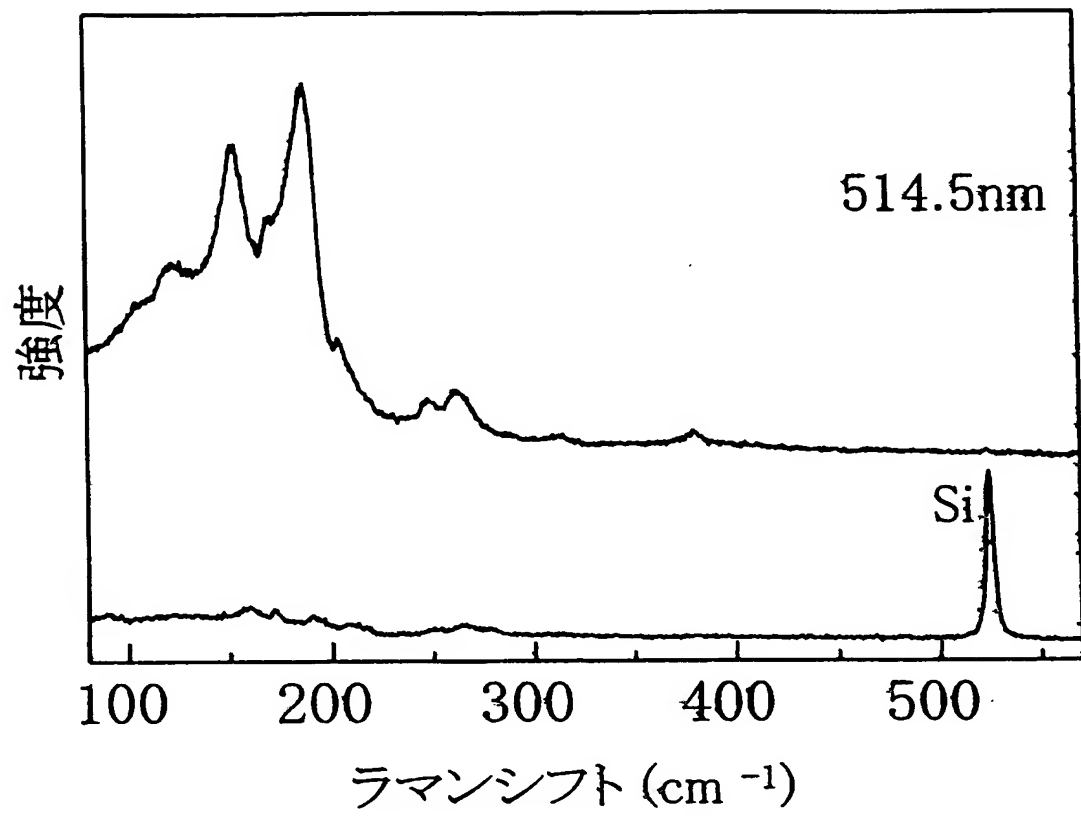
[図8(c)]



[図9]



[図10]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/011838

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ B82B3/00, C01B21/064, C01B31/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ B82B3/00, C01B21/064, C01B31/02, H01L29/06, B01J19/00,
19/08, B22F3/105, B23K26/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	M. Yudasaka et al., "Diameter-selective removal of single-wall carbon nanotubes through light-assisted oxidation", Chemical Physics Letters, 04 June, 2003 (04.06.03), Vol.374, Nos.1, 2, pages 132 to 136, full text	1-8
X	JP 05-261267 A (Nippon Sheet Glass Co., Ltd.), 12 October, 1993 (12.10.93), Full text (Family: none)	1-3, 5-8
P, X	JP 2004-210608 A (Japan Science and Technology Agency), 29 July, 2004 (29.07.04), Full text & WO 2004/60801 A1	1-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
19 November, 2004 (19.11.04)Date of mailing of the international search report
07 December, 2004 (07.12.04)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/011838

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, X	JP 2004-284852 A (Toshiba Corp.), 14 October, 2004 (14.10.04), Full text (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B82B3/00, C01B21/064, C01B31/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B82B3/00, C01B21/064, C01B31/02, H01L29/06,
B01J19/00, 19/08, B22F3/105, B23K26/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2004年
日本国実用新案登録公報	1996-2004年
日本国登録実用新案公報	1994-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	M. Yudasaka et al. "Diameter-selective removal of single-wall carbon nanotubes through light-assisted oxidation", Chemical Physics Letters, 2003. 06. 04, Vol. 374, No. 1, 2, p. 132-136, 全文	1-8
X	JP 05-261267 A (日本板硝子株式会社), 1993. 10. 12, 全文, (ファミリーなし)	1-3, 5-8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

19. 11. 2004

国際調査報告の発送日

07.12.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
郵便番号 100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

佐藤 秀樹

2M

3154

電話番号 03-3581-1101 内線 3154

C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P X	JP 2004-210608 A (独立行政法人科学技術振興機構), 2004. 07. 29, 全文, & WO 2004/60801 A1	1-8
E X	JP 2004-284852 A (株式会社東芝), 2004. 10. 14, 全文, (ファミリーなし)	1-8

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning these documents will not correct the image
Problems checked, please do not report these problems to
the IFW Image Problem Mailbox.**